Document FP2 Appl. No.: TBA

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開2000-103784

(P2000-103784A)

(43)公開日 平成12年4月11日(2000.4.11)

(51) Int.Cl.'	識別記号	FΙ		テーマコート*(参考)
C 0 7 D 231/22		C 0 7 D 231/22	В	4 C 0 6 3
A 0 1 N 43/56		A01N 43/56	D	4H011
C 0 7 D 401/04	2 3 1	C 0 7 D 401/04	231	

審査請求 未請求 請求項の数2 OL (全 8 頁)

(21)出願番号	特顧平10-277584	(71) 出顧人 000005968
		三菱化学株式会社
(22)出顧日	平成10年9月30日(1998.9.30)	東京都千代田区丸の内二丁目 5 番 2 号
		(72)発明者 岡田 至
		神奈川県横浜市青業区鴨志田町1000番地
		三菱化学株式会社横浜総合研究所内
		(72)発明者 富田 啓文
		神奈川県横浜市青菜区鴨志田町1000番地
		三菱化学株式会社横浜総合研究所内
		(74)代理人 100103997
		弁理士 長谷川 曉司
		Fターム(参考) 40063 AA01 BB02 0022 DD12 EE03
		4HO11 AAO1

(54)【発明の名称】 5-アルコキシピラゾール-3-カルボキサミド誘導体およびこれを有効成分とする農薬

(57)【要約】

【課題】 各種の植物病原菌に対し、高い防除効果を有する新しい化合物を提供する。

【解決手段】 下記一般式(I)で示される5-アルコキシピラゾール-3-カルボキサミド誘導体

【化1】

(式中、 R^1 はアルキル、アリルまたはハロアルキル基を示す。 R^2 はハロゲン原子、アルキル、ニトロ、シアノまたはトリフルオロメチル基を示す。)

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式(I)

【化1】

$$R^{2} \stackrel{N}{\underset{N}{\longleftarrow}} N \stackrel{OR^{1}}{\underset{N}{\longleftarrow}} C-NHC_{3}H_{7}-n$$

$$(1)$$

(式中、 R^1 は C_1 ~ C_4 のアルキル基、アリル基または C_1 ~ C_4 のハロアルキル基を示し、 R^2 はハロゲン原子、 C_1 ~ C_4 のアルキル基、ニトロ基、シアノ基またはトリフルオロメチル基を示し、YはCHまたは窒素原子を示す)で表される5-アルコキシピラゾール-3-カルボキサミド誘導体。

【請求項2】 請求項1 に記載の5-アルコキシピラゾール-3-カルボキサミド誘導体を有効成分として含有する農薬。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は新規な5-アルコキシピラゾール-3-カルボキサミド誘導体およびこれを有効成分として含有する農薬、特に殺菌剤に関する。

[0002]

【従来の技術】従来、農園芸分野では、各種病害の防除を目的とした様々な殺菌剤が開発され実用に供されている。しかしながら、従来汎用されている農園芸用殺菌剤は、殺菌効果、殺菌スペクトラムまたは残効性などの点において必ずしも満足すべきものではない。また、施用回数や施用薬量の低減などの要求も満足しているとはいえないものであった。

【0003】また、従来汎用の農薬に対して抵抗性を獲得した病原菌の出現も問題となっている。例えば、野菜、果樹、花卉、茶、ムギ類及びイネ等の栽培において、様々な型の農薬、例えば、トリアゾール系、イミダゾール系、ピリミジン系、ベンズイミダゾール系、ジカルボキシイミド系、フェニルアミド系農薬等に抵抗性を獲得した種々の病原菌が各地で出現しており、これらの病原菌に起因する各種病害の防除が年々困難になっている

【0004】さらに、ジチオカルバメート系やフタルイミド系農薬等の様に病原菌が未だ抵抗性を獲得していない農薬もあるが、これらは一般に施用薬量や施用回数が多く、環境汚染などの観点から好ましいものではない。従って、従来汎用の農園芸用殺菌剤に抵抗性を獲得した各種病原菌に対しても低薬量で十分な防除効果を示し、しかも環境への悪影響が少ない新規な殺菌剤の開発が切望されている。

【0005】 ピラゾールカルボキサミド誘導体は、ピラ ゾール環上の3個の置換基とカルボキサミド部分のアミ ノ基の種類により、それぞれ、殺虫、殺ダニ、殺菌、除 草活性あるいは医薬活性等の生理活性を有することが知 られている。例えば1-フェニルピラゾール-3-カル ボキサミド誘導体については、特開昭64-25763 号には殺虫および殺ダニ活性を有するNーアラルキルー 1-フェニルピラゾール-3-カルボキサミド誘導体が 報告されている。除草剤の薬害軽減作用を有する物質と して、特開昭63-91373号には、N-アルキルー 4-ハロゲノー5-非置換-1-フェニルピラゾールー 3-カルボキサミド誘導体が;特開平1-283274 号公報には、N-アルキル-4-非置換-5-アルキル -1-フェニルピラゾール-3-カルボキサミド誘導体 が; また、特開昭63-115867号にはN-アルキ ル-4-非置換-1,5-ジフェニルピラゾール-3-カルボキサミド誘導体が記載されているが、これらは殺 菌活性については全く記載していない。また、除草活性 を有するN-アルキル-4-ハロゲノ-1,5-ジフェ ニルピラゾールー3ーカルボキサミドが特開平8-12 654号公報に記載されているが殺菌活性については全 く記載されていない。

【0006】さらに、医薬活性を有するN-アルキルー4-非置換-5-アルコキシー1-フェニルピラゾールー3ーカルボキサミド誘導体が薬学雑誌、97巻、719頁(1977)およびJournal of Medical Chemistry,20巻、80頁(1977)に記載されているが農薬活性については全く記載されていない。また、N-メチルー4-ブロモー5-メトキシー1-フェニルピラゾールー3ーカルボキサミドが名古屋市立大学薬学部研究年報、29巻、25頁(1981)に記載されているが、医薬活性がないばかりか農薬活性については全く記載されていない。以上述べた様に5-アルコキシピラゾールー3ーカルボキサミド誘導体の殺菌活性については全く報告がない。

[0007]

【発明が解決しようとする課題】本発明は、従来の農園 芸用殺菌剤に抵抗性を示す各種病原菌に対しても高い防 除効果を示し、かつ、残留毒性や環境汚染等の問題が軽 減された安全性の高い、農園芸用殺菌剤の有効成分として有用な化学物質を提供することにある。

[0008]

【課題を解決するための手段】本発明者等は上記の課題を解決すべく鋭意努力した結果、下記の式で示される新規な5-アルコキシピラゾール-3-カルボキサミドにより上記の課題を解決し得ることを見い出し、本発明を完成するに至った。すなわち本発明の要旨は、下記一般式(I)

[0009]

【化2】

$$\begin{array}{c}
R^{2} \stackrel{\text{\tiny V}}{\longleftarrow} N \stackrel{\text{\tiny N}}{\longrightarrow} OR^{1} \\
C - NHC_{3}H_{7} - n \\
0
\end{array}$$

【0010】(式中、R1 はC1 ~C4 のアルキル基、 アリル基またはC₁~C₄のハロアルキル基を示し、R ² はハロゲン原子、C₁~C₄のアルキル基、ニトロ 基、シアノ基またはトリフルオロメチル基を示し、Yは CHまたは窒素原子を示す)で表される5ーアルコキシ ピラゾールー3-カルボキサミド誘導体およびこの化合 物を有効成分として含有する農薬に存する。

【0011】前述の如く、医薬活性を有する5-アルコ キシピラゾールー3ーカルボキサミド誘導体は知られて いる。しかしながら、本発明と最も類似した薬学雑誌、 97巻、719頁(1977)記載のN-アルキル-5 -アルコキシ-1-置換フェニルピラゾール-3-カル ボキサミド誘導体は、カルボキサミドのN-置換基とし て、メチル、ジメチル、ジイソプロピル、n-ブチル、 2-ジエチルアミノエチル、エチル、ジエチル、sec ーブチル、2-ヒドロキシエチルの化合物が示されてい るが、N-アルキル基としてn-プロピル基の化合物は 記載されていない。1-位の置換基としてピリジル基は

【0014】(上記式中、R1、R2 およびYは前記一 **般式(I)で定義したとおりであり、Zは塩素原子、臭** 素原子、水酸基、メトキシ基、エトキシ基またはプロポ キシ基を示す。)。

【0015】上記一般式(II)において、Zが塩素原 子、臭素原子を示す場合には、溶媒としてベンゼン、ト ルエン、キシレン等の芳香族炭化水素; アセトン、メチ ルエチルケトン、メチルイソプチルケトン等のケトン 類;クロロホルム、塩化メチレン等のハロゲン化炭化水 素;水;酢酸メチル、酢酸エチル等のエステル類;また はテトラヒドロフラン、アセトニトリル、ジオキサン、 N, N-ジメチルホルムアミド、N-メチルピロリドン またはジメチルスルホキシド等の極性溶媒等を用い、0 ℃~30℃、好ましくは0℃~5℃で塩基の存在下反応 を行うことが出来る。塩基としては、例えば、水酸化ナ トリウム、水酸化カリウム、ピリジンまたはトリエチル 全く記載されていない。また、農薬活性については全く 記載されていない。そして、後述の試験例から明らかな 様にカルボキサミドのNー置換基がnープロピル基であ る化合物は、N-置換基がメチル基である対応化合物に 比し、卓越した農薬活性を有している。

[0012]

【発明の実施の形態】一般式(I)において、R1 とし ては具体的に、メチル基、エチル基、n-プロピル基、 イソプロピル基、n-ブチル基、sec-ブチル基、t ーブチル基等の直鎖もしくは分岐のC₁~C₄のアルキ ル基;アリル基、ジフルオロメチル基、トリクロロメチ ル基、ペンタフルオロエチル基等のC1~C4のハロア ルキル基が挙げられる。R2 は、フッ素原子、塩素原 子、臭素原子、ヨウ素原子等のハロゲン原子;メチル 基、エチル基、nープロピル基、イソプロピル基、シク ロプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tーブチル基等のC、~C、の直鎖、分岐鎖 もしくは環状アルキル基、ニトロ基、シアノ基;トリフ ルオロメチル基が挙げられる。一般式(I)で示される 化合物は、例えば下記反応式に従って製造することがで きる。

[0013] 【化3】

$$\begin{array}{c}
 & \text{N - C}_{3} \text{H}_{7} \text{ NH}_{2} \\
 & \text{(II)}
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
 & \text{OR} \\
 & \text{N} \\
 & \text{C - NHC}_{3} \text{H}_{7}
\end{array}$$

アミン等を用いることが出来る。

【0016】また、一般式(II)において、Zが水酸 基、メトキシ基、エトキシ基、またはプロポキシ基であ る場合には、溶媒の非存在下、または、メチルアルコー ル、エチルアルコール、プロピルアルコール等のアルコ ール溶媒中で5~100℃、好ましくは20~80℃で 反応を行うことが出来る。反応後、目的物である一般式 (I)で表される化合物を単離するには、水に溶解する 溶媒を用いた場合は、減圧下溶媒を留去し、水を加えた 後、水に不溶のベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香 族炭化水素; クロロホルム、塩化メチレン等のハロゲン 化炭化水素等; 酢酸エチル等のエステル類で抽出し、飽 和食塩水で洗浄後、無水硫酸ナトリウム等の乾燥剤で乾 燥し、減圧下で溶媒を留去すれば良い。水に不溶の溶媒 を用いた場合は、反応混合物に水を加えた後分液し有機 層を飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸ナトリウム等の乾燥

剤で乾燥後減圧下で溶媒を留去すればよい。

【0017】溶媒留去後得られた残渣はそのままでも十分純品であることもあるが、不純な場合には目的物を余り溶解しないヘキサン、ヘプタン等の炭化水素で洗浄するか、再結晶またはカラムクロマトグラフィーで精製すれば純品が得られる。また、一般式(II)で表される化合物は、例えば薬学雑誌、97巻、719頁(1977)およびJournal of Medical Chemistry, 20巻, 80頁(1977)に記載された方法に準じて合成することができる。

【0018】一般式(I)で示される本発明化合物は、いもち病菌、さび病菌、べと病菌、疫病菌等の各種植物病原菌に対して高い殺菌効果を有しており、農薬、特に農園芸用殺菌剤の有効成分として有用である。もっとも、本発明の化合物の防除対象となる植物病原菌は上記に例示したものに限定されることはない。一般式(I)で示される本発明化合物を農薬、例えば農園芸用の殺菌剤として使用する場合には、単独で用いてもよいが、好ましくは当業界で汎用される農薬補助剤を加えた組成物として用いるのが好ましい。農園芸用殺菌剤の剤型は特に限定されないが、例えば乳剤、水和剤、粉剤、フロアブル剤、細粒剤、粒剤、錠剤、油剤、噴霧剤、煙霧剤等の形態とすることが好適である。上記の化合物の1種又は2種以上を有効成分として配合することができる。

【0019】農園芸用殺菌用を製造するために用いられ る農薬補助剤は例えば、農園芸用殺菌剤の効果の向上、 安定化、分散性の向上等の作用を有する物質で、たとえ ば、担体(希釈剤)、展着剤、乳化剤、湿展剤、分散 剤、崩壊剤等を用いることができる。液体担体として は、例えば水:トルエン、キシレン等の芳香族炭化水 素;メタノール、ブタノール、グリコール等のアルコー ル類; アセトン等のケトン類; ジメチルホルムアミド等 のアミド類:ジメチルスルホキシド等のスルホキシド 類;メチルナフタレン;シクロヘキサン;動植物油;ま たは脂肪酸等を挙げることができる。また、固体担体と しては、例えばクレー、カオリン、タルク、珪藻土、シ リカ、炭酸カルシウム、モンモリロナイト、ベントナイ ト、長石、石英、アルミナ、鋸屑、ニトロセルロース、 デンプン、アラビアゴム等が挙げられる。乳化剤、分散 剤としては通常の界面活性剤を使用することが出来、例 えば、高級アルコール硫酸ナトリウム、ステアリルトリ メチルアンモニウムクロライド、ポリオキシエチレンア ルキルフェニルエーテル、ラウリルベタイン等の陰イオ ン系界面活性剤; 陽イオン系界面活性剤; 非イオン系界 面活性剤;または両性イオン系界面活性剤等を用いるこ とが出来る。また、ポリオキシエチレンノニルフェニル エーテル、ポリオキシエチレンラウリルフェニルエーテ ル等の展着剤; ジアルキルスルホサクシネート等の湿展 剤;カルボキシメチルセルロース、ポリビニルアルコー ル等の固着剤;リグニンスルホン酸ナトリウム、ラウリ

【0020】本発明の農園芸用殺菌剤における有効成分の含有量は、0.1~99.5%の範囲から選ばれ、製剤形態、施用方法等の種々の条件により適宜決定すればよいが、例えば、粉剤では約0.5~20重量%程度、好ましくは1~10重量%、水和剤では約1~90重量

ル硫酸ナトリウム等の崩壊剤を用いることができる。

好ましくは $1\sim10$ 重量%、水和剤では約 $1\sim90$ 重量%程度、好ましくは $10\sim80$ 重量%、乳剤では約 $1\sim90$ 重量%程度、好ましくは $10\sim40$ 重量%、フロアブル剤では約 $1\sim90$ 重量%程度、好ましくは $10\sim50$ 重量%の有効成分を含有するように製造することが好

適である。

【0021】例えば、乳剤の場合、有効成分である上記 化合物に対して溶剤および界面活性剤等を混合して原液 の乳剤を製造することが出来、さらにこの原液を、使用 に際して、所定濃度に水で希釈して施用する。フロアブ ル剤の場合、有効成分である上記化合物に対して水およ び界面活性剤等を混合して原液を製造することが出来、 さらにこの原液を使用に際して所定濃度に水で希釈して 施用する。水和剤の場合、有効成分の上記化合物、固形 担体及び界面活性剤等を混合して製造し、さらに使用に 際して所定濃度に水で希釈して施用する。粉剤の場合、 有効成分の上記化合物、固形担体等を混合してそのまま 施用することができ、粒剤の場合には、有効成分の上記 化合物、固形担体及び界面活性剤等を混合して造粒する ことにより製造し、そのまま施用することが出来る。も っとも、上記の各製剤形態の製造方法は上記のものに限 定されることはなく、有効成分の種類や施用目的等に応 じて当業者が適宜選択することができるものである。

【0022】本発明の農園芸用殺菌剤には、有効成分で ある本発明の化合物の活性を損なわない限り、他の殺菌 剤、殺虫剤、殺ダニ剤、除草剤、昆虫生育調整剤、肥 料、土壌改良剤等の任意の有効成分を配合してもよい。 本発明の農園芸用殺菌剤の施用方法は特に限定されるも のではなく、茎葉散布、水面施用、土壌処理、種子処理 等のいずれの方法でも施用することが出来る。例えば、 茎葉散布の場合、5~1,000ppm、好ましくは1 0~500ppmの濃度範囲の溶液を10アール当たり 100~200 L程度の施用量で用いることができる。 水面施用の場合の施用量は通常、有効成分が5~15% の粒剤では10アール当たり1~10kgである。土壌 処理の場合、5~1,000ppmの濃度範囲の溶液を 1 m² 当たり1~10 L程度の施用量で用いることがで きる。種子処理の場合、種子重量1kg当たり10~ 1,000ppmの濃度範囲の溶液を10~100ml 程度施用処理することができる。

[0023]

【実施例】以下、本発明を実施例、製剤例及び試験例によりさらに具体的に説明するが、本発明はその要旨を越えない限り以下の例に限定されるものではない。なお、以下の実施例の出発物質の1部の製造例を参考例として

示す。

【0024】 <参考例1> 1-(4-クロロフェニル)-5-ジフルオロメトキシピラゾール-3-カルボン酸エチルの合成

乾燥エチルアルコール100ml中にクロロジフルオロ メタンガス20.0gを吹き込み、1-(4-クロロフ ェニル)-5-ヒドロキシピラゾール-3-カルボン酸 エチル10.0gと炭酸カリウム7.31gを加え、オ ートクレーブ内で70℃、2時間加熱した。室温に冷却 後、減圧下濃縮した。得られた残渣に水を加え酢酸エチ ルで抽出後、飽和食塩水で洗浄した。有機相を分液し、 減圧下濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフ ィーで精製し、目的物である1-(4-クロロフェニ ル)-5-ジフルオロメトキシピラゾール-3-カルボ ン酸エチル7.51g、mp94~95℃を得た。 $^{1}H-NMR$ (CDCl₃) $\delta ppm:1.41$ (3 H, t, J=7.2Hz), 4.43 (2H, q, J=7. 2Hz), 6. 56 (1H, t, J=7. 1H z), 6.60 (1H, s), 7.45 (2H, d, J =9Hz), 7.60(2H, d, J=9Hz).

【0025】<参考例2> 1-(4-シアノフェニル)-5-ジフルオロメトキシピラゾール-3-カルボン酸エチルの合成

参考例1と同様にして1-(4-シアノフェニル)-5 ーヒドロキシピラゾール-3-カルボン酸エチルとクロロジフルオロメタンを反応させ、目的物、mp137~ 138℃を得た。

 1 H-NMR (CDC 1 3) δ ppm: 1. 42 (3 H, t, J=7. 2Hz), 4. 44 (2H, q, J=7. 2Hz), 6. 61 (1H, t, J=7. 1Hz), 6. 62 (1H, s), 7. 79 (2H, d, J=9Hz), 7. 88 (2H, d, J=9Hz)。 【0026】 <参考例3> 1-(5-クロロピリジン-2-イル)-5-メトキシピラゾール-3-カルボン酸エチルの合成

1-(5-クロロピリジン-2-イル)-5-ヒドロキシピラゾール-3-カルボン酸エチル29.6g、炭酸カリウム21.9gとジメチル硫酸17.0gをエタノール150ml中で5時間加熱還流した。減圧下濃縮後、残渣に水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機相を分液し、水、飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。減圧下濃縮し、残渣をヘキサン-アセトンで洗浄し、目的物15.8g、mp117~118℃を得た。

 $^{1}H-NMR (CDCl_{3}) \delta ppm: 1.41 (3 H, t, J=7.2Hz), 4.03 (3H, s), 4.24 (2H, q, J=7.2Hz), 6.24 (1 H, s), 7.95-8.07 (3H, m), 8.51 (1H, s).$

【0027】 <参考例4> 1-(5-トリフルオロメ

チルピリジン-2-イル)-5-メトキシピラゾール-3-カルボン酸エチルの合成

参考例3と同様にして1-(5-トリフルオロメチルピリジン-2-イル)-5-ヒドロキシピラゾール-3-カルボン酸エチルとジメチル硫酸を反応させ、目的物、mp85~86℃を得た。

 $^{1}H-NMR$ (CDCl₃) δ ppm: 1. 42(3 H, t, J=7. 2Hz), 4. 06(3H, s), 4. 44(2H, q, J=7. 2Hz), 6. 26(1 H, s), 7. 95-8. 08(3H, m), 8. 83(1H, s).

【 0 0 2 8 】 <参考例 5 > 1 - (4 - シアノフェニル) - 5 - メトキシピラゾール - 3 - カルボン酸エチルの合成

参考例3と同様にして1-(4-シアノフェニル)-5-ヒドロキシピラゾール-3-カルボン酸エチルとジメチル硫酸を反応させ、目的物、mp123~125℃を得た。

 $^{1}H-NMR (CDCl_{3}) \delta ppm: 1.42(3)$ H, t, J=7.2Hz), 4.04(1H, s), 4.43(2H, q, J=7.2Hz), 6.24(1H, s), 7.73(2H, d, J=9Hz), 7.98(2H, d, J=9Hz),

【0029】<実施例1> N-n-プロピル-1-(4-ブロモフェニル)-5-メトキシピラゾール-3 -カルボキサミドの合成

1-(4-ブロモフェニル)-5-メトキシピラゾール-3-カルボン酸0.59gと塩化チオニル4mlを1時間加熱還流した。未反応の塩化チオニルを減圧留去後、残渣をトルエン10mlに溶解した。この溶液をn-プロピルアミン0.59gおよびトリエチルアミン1.01gのトルエン10ml溶液中に0~10℃で滴下した。滴下後室温で2時間撹拌した後、反応液を氷水に注ぎトルエンで抽出した。トルエン相を水、飽和食塩水の順で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥後、トルエンを減圧下に留去した。残渣をヘキサンで洗浄し、表-1記載の化合物(No.3)を得た。融点は75~77℃であった。

【 0 0 3 0 】 <実施例 2 > N - n - プロピル - 1 - (4 - シアノフェニル) - 5 - メトキシピラゾール - 3 - カルボキサミドの合成

参考例5で得られた1-(4-シアノフェニル)-5-メトキシピラゾール-3-カルボン酸エチル0.54gをn-プロピルアミン2.36g中、室温で8時間撹拌した。反応液を減圧下濃縮し、得られた残渣をヘキサンで洗浄し、表-1記載の化合物(No.11)0.45gを得た。融点は146~147℃であった。

【0031】<実施例3>実施例1または実施例2の方法に準じて表-1記載の化合物を得た。

[0032]

表-1					
$ \begin{array}{c} R^{2} \stackrel{\wedge}{\swarrow}_{=Y} \stackrel{N}{\longrightarrow} \stackrel{OR^{1}}{\longrightarrow} \\ C - NHC_{3} H_{7} - n \\ 0 \end{array} $					
化合物 No.	R 1	R 2	Y	融点mp (℃)	
1	CH ₃	C 1	СН	82-83	
2	CH ₃	NC	N	132-134	
3	CH ₃	Вr	СН	75-77	
4	CH ₃	CH3	СН	78-79	
5	CH ₃	CF ₃	СН	75-76	
6	CH3	OzN	СН	160-161	
. 7	CH ₈	C 1	N	71-72	
8	CH ₈	CF3	N	73-74	
9	CH ₃	1	СН	71-73	
10	C ₂ H ₅	CI	СН	108-110	
1 1	CH ₃	NC	Сн	146-147	
1 2	$CH_2 - CH = CH_2$	C I	СН	58-60	
1 3	CHF ₂	C 1	СН	84-86	
1 4	CHF ₂	NC	СН	117-119	

【0033】<製剤例1>水和剤

本発明の化合物No.9(以下、化合物No.は表-1の化合物No.に対応する。)を20重量部、カープレックス#80(ホワイトカーボン、塩野義製薬株式会社、商品名)20重量部、STカオリンクレー(カオリナイト、土屋カオリン社、商品名)52重量部、ソルボール9047K(アニオン性界面活性剤、東邦化学株式会社、商品名)5重量部、ルノックスP65L(アニオン性界面活性剤、東邦化学株式と社、商品名)3重量部を配合し、均一に混合粉砕して、有効成分20重量%の水和剤を得た。

【0034】<製剤例2>粉剤

本発明の化合物No.11を2重量部、クレー(日本タルク社製)93重量部、カープレックス#80(ホワイトカーボン、塩野義製薬株式会社、商品名)5重量部を均一に混合粉砕して、有効成分2重量%の粉剤を製造した。

【0035】<製剤例3>乳剤

本発明の化合物No.11を20重量部、キシレン35 重量部およびジメチルホルムアミド30重量部からなる 混合溶媒に溶解し、これらにソルポール3005X(非 イオン性界面活性剤とアニオン性界面活性剤の混合物、 東邦化学株式会社、商品名) 15重量部を加えて、有効成分20重量%の乳剤を得た。

【0036】<製剤例4>フロアブル剤

本発明の化合物No. 11を30重量部、ソルボール9047K 5重量部、ソルボンT-20(非イオン性界面活性剤、東邦化学株式会社、商品名)3重量部、エチレングリコール8重量部および水44重量部をダイノミル(シンマルエンタープライゼス社製)で湿式粉砕し、このスラリー状混合物に1重量%キサンタンガム(天然高分子)水溶液10重量部を加え、良く混合粉砕して、有効成分20重量%のフロアブル剤を得た。

【0037】<試験例1>イネいもち病に対する殺菌効 風

直径6cmの樹脂製ポットで1ポット当り10株のイネ(品種:アキニシキ)を育成した。製剤例3の処方に従って製剤した本発明の農園芸用殺菌剤(乳剤)を水で所定濃度に希釈し、上記のイネ(3~4葉期)に1ポット当り10m1の割合で茎葉散布した。散布した薬液を風乾した後のイネに、オートミール培地で培養したイネいもち病菌(Magnaporthe grisea)の胞子懸濁液(5.0×10⁵ 胞子/ml)を噴霧接種し、25℃の湿室に24時間保った。その後、温室内

(22~25℃)で7日間放置し、出現した病斑面積率

に対応する。

を測定し、下式により防除価を算出した。結果を表-2

[0038]

に示した。なお、化合物No. は表-1の化合物No.

【数1】

(無処理区1葉当りの病死面積率) - (処理区1葉当りの病斑面積率)

防除価=-

(無処理区1葉当りの病斑面積率)

×100 (%)

【0039】<比較試験例1>薬学雑誌、97巻、71 9頁(1977)に記載される下記化合物を用い、試験 例1と同様にいもち病菌に対する殺菌効果を試験した。 【0041】

【表2】

結果を表-2に示した。 【0040】

【化4】

表-2

化合物No.	濃度(ppm)	防除価(%)
1	500	100
3	500	100
9	500	100
1 1	500	100
1 2	500	100
比較例 1	500	0

【0042】<試験例2> トマト疫病に対する殺菌効 里

直径6 c mの樹脂製ポットで、1ポット当り3株のイネ (品種:レッドチェリー)を育成した。製剤例1の処方に従って製剤した化合物No.11の農園芸用殺菌剤 (水和剤)を水で500ppmに希釈し、上記のイネ (3~4葉期)に1ポット当り10mlの割合で茎葉散布した。散布した薬液を風乾した後のイネに、トマト切葉上で培養したトマト疫病菌 (Phytophthora infestans)の遊走子嚢懸濁液 (5.0×10⁴遊走子嚢/ml)を噴霧接種し、25℃の湿室に 24時間保った。その後、温室内 (20~22℃)で4

日間放置し、葉中に出現した病斑面積を測定し発病指数 で示し、下記式により防除価を算出したところ、防除価 は100%であった。

[0043]

【表3】

発病指数 0:無病斑

1:病斑面積1/3以下 3:病斑面積1/3~2/3

5:病斑面積2/3以上

【0044】 【数2】

 $0 \times n_0 + 1 \times n_1 + 3 \times n_3 + 5 \times n_5$

発病度 (%) =----×100

 $5 (n_0 + n_1 + n_3 + n_6)$

n_x:1ポット当りの、上記発病指数がxであるトマト

[0045]

【数3】

の葉数

!(8) 000-103784 (P2000-鬘牽

無処理区発病度-処理区発病度

防除価=------ ×100

無処理区発病度

[0046]

- カルボキサミド類は、各種の植物病原菌に対して優れ

【発明の効果】本発明の5-アルコキシピラゾール-3 た防除効果を有し、農園芸用殺菌剤として有用である。